

超高速赤外分光でみる光誘起相転移の初期過程

東北大理、CREST 岩井伸一郎

強相関電子系における光誘起絶縁体－金属転移はどのように始まるのだろうか？我々は、典型的な有機伝導体である二次元 ET(BEDT-TTF)塩を対象に、赤外、テラヘルツ超高速分光による研究を行っている。これまでの研究から、同じ ET 分子からなる二次元電子系であっても、その分子配列によって、光誘起相転移の初期過程は大きく異なることがわかってきた。図に、電荷秩序系 (α -(ET)₂I₃(a), θ -(ET)₂RbZn(SCN)₄(b))と、ダイマーモット系 (κ -(d-ET)₂Cu[N(CN)₂]Br (c))の分子配列と、光誘起金属状態の生成を反映する反射率変化の時間発展を示す。電荷秩序系 ((a), (b))において観測される< 30 fs の瞬時応答は、分子間の電荷移動や分子内振動の時間スケールにも匹敵することから、格子変位によるものではなく電子的なプロセスと考えるのが自然である[1-4]。一方、ET ダイマー格子からなるダイマーモット系、 κ -(d-ET)₂Cu[N(CN)₂]Br (c)では、ダイマー内の分子配置の変化によって、クーロンエネルギー U_{dim} が減少し、 ~ 1 ps を経て金属状態の生成に至ると考えられる [5]。

ところで、光励起によって電子分極が生成する時間は、たかだか数フェムト秒(波長 1.5 ミクロンの場合、一周期 ~ 4 fs)である。また、絶縁体－金属転移が、分子間にまたがる巨視的な電子状態の変化である以上、分子間の電荷移動の時間スケール(~ 40 fs)が光誘起絶縁体－金属転移の時間スケールを考える上でのひとつの目安となる。実際に電荷秩序系では、それに近い超高速応答が観測されている。一方、ダイマーモット系における金属の生成時間(~ 1 ps)は、それらのスケールに比べあまりにも長い。その間、電子や分子は何を待っているのだろうか？電子相関によって ET 分子上に局在した電荷は、高周波の分子内振動(周期 ~ 20 fs)と強く相互作用していることを考慮するならば、金属状態の生成以前にそのような分子振動が何らかの役割を果たしていることも予想される。励起波長依存性などの結果から、ダイマーモット絶縁体における光誘起絶縁体－金属転移の初期過程を議論する。

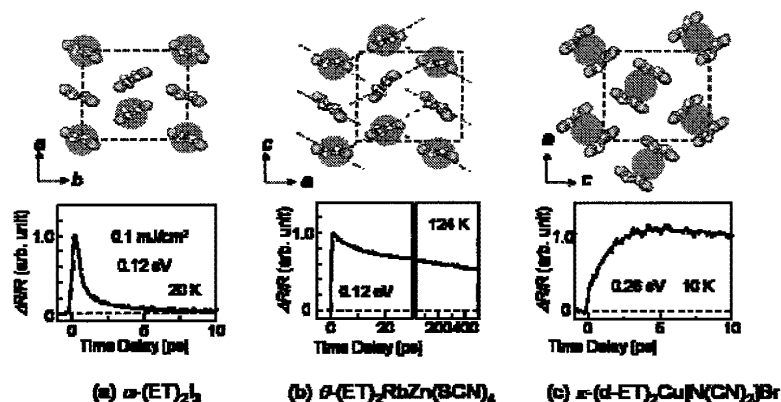


図 二次元 ET 塩の分子配列と反射率変化の時間発展

- [1] Iwai et al. Phys. Rev. Lett. 98, 097402 (2007).
- [2] Iwai et al. Phys. Rev. B77, 125131(2008).
- [3] Yamamoto, Iwai et al. J. Phys. Soc. Jpn. 77, 074709 (2008).
- [4] Nakaya et al. J. Lumin. 128 (2008) 1065.
- [5] Kawakami et al. Phys. Rev. Lett. 103, 066403(2009).